WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM Internationales Büro

INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation ⁶ :

C07D 239/52, 239/56, A01N 43/54

(11) Internationale Veröffentlichungsnummer:

WO 98/21189

(43) Internationales Veröffentlichungsdatum:

22. Mai 1998 (22.05.98)

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/EP97/05954

A1

(22) Internationales Anmeldedatum: 29. Oktober 1997 (29.10.97)

(30) Prioritätsdaten:

196 46 407.2

11. November 1996 (11.11.96) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): GAYER, Herbert [AT/DE]; Sandstrasse 66, D-40789 Monheim (DE). GERDES, Peter [DE/DE]; Waldstrasse 75, D-52080 Aachen (DE). HEINE-MANN, Ulrich [DE/DE]; Am Sonnenhang 1, D-42799 Leichlingen (DE). KRÜGER, Bernd-Wieland [DE/DE]; Am Vorend 52, D-51467 Bergisch Gladbach (DE). TIEMANN, Ralf [DE/DE]; Ernst-Ludwig-Kirchner-Strasse 5, D-51375 Leverkusen (DE). DUTZMANN, Stefan [DE/DE]; Weißenstein 95, D-40764 Langenfeld (DE). HÄNSSLER, Gerd [DE/DE]; Am Arenzberg 58a, D-51381 Leverkusen (DE). STENZEL, Klaus [DE/DE]; Seesener Strasse 17, D-40595 Düsseldorf (DE).

AKTIENGE-(74) Gemeinsamer Vertreter: **BAYER** SELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE).

(81) Bestimmungsstaaten: AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GE, GH, HU, ID, IL, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZW, ARIPO Patent (GH, KE, LS, MW, SD, SZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht

Mit internationalem Recherchenbericht. Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist. Veröffentlichung wird wiederholt falls Anderungen eintreffen.

(54) Title: HALOGEN PYRIMIDINYL ARYL (THIO)ETHERS AS PESTICIDES

(54) Bezeichnung: HALOGENPYRIMIDINYLARYL(THIO)ETHER ALS PESTIZIDE

(57) Abstract

The invention relates to novel halogen pyrimidines, two methods for the production thereof and the use thereof as pesticides.

(57) Zusammenfassung

Die Erfindung betrifft neue Halogenpyrimidine, zwei Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Schädlingsbekämpfungsmittel.

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

4.1	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AL	Amenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AM	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AT		GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AU	Australien	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
AZ	Aserbaidschan	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BA	Bosnien-Herzegowina	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BB	Barbados		Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische	TM	Turkmenistan
BE	Belgien	GN	Griechenland		Republik Mazedonien	TR	Türkei
BF	Burkina Faso	GR		ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BJ	Benin	IE	Irland	MR	Mauretanien	υG	Uganda
BR	Brasilien	IL	Israel	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von
BY	Belarus	IS	Island		Mexiko	OB	Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	MX		UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	YU	
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen		Jugoslawien Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik	NZ	Neuseeland	zw	Zimbaowe
CM	Kamerun		Korea	PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
Cυ	Kuba	ΚZ	Kasachstan	RO	Rumānien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

HALOGENPYRIMIDINYLARYL(THIO)ETHER ALS PESTIZIDE

Die Erfindung betrifft neue Halogenpyrimidine, zwei Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Schädlingsbekämpfungsmittel.

Bestimmte Pyrimidine mit ähnlichem Substitutionsmuster, sowie deren fungizide Wirkung sind bereits bekannt geworden (GB-A 2253624). Die Wirkung dieser vorbekannten Verbindungen ist jedoch insbesondere bei niedrigen Aufwandmengen und Konzentrationen nicht in allen Anwendungsgebieten völlig zufriedenstellend.

Es wurden nun die neuen Halogenpyrimidine der allgemeinen Formel (I) gefunden,

10 in welcher

5

- Z für jeweils gegebenenfalls substituiertes Cycloalkyl, Aryl oder Heterocyclyl steht,
- R für Wasserstoff oder Alkyl steht,
- Q für Sauerstoff oder Schwefel steht,
- 15 X für Halogen steht und
 - L¹, L², L³ und L⁴ gleich oder verschieden sind und unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, Halogen, Cyano, Nitro, jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl stehen.
- In den Definitionen sind die gesättigten oder ungesättigten Kohlenwasserstoffketten, wie Alkyl, Alkandiyl, Alkenyl oder Alkinyl, auch in Verknüpfung mit Heteroatomen, wie beispielsweise in Alkoxy, Alkylthio oder Alkylamino, jeweils geradkettig oder verzweigt.

10

Aryl steht für aromatische, mono oder polycyclische Kohlenwasserstoffringe, wie z.B. Phenyl, Naphthyl, Anthranyl, Phenanthryl, vorzugsweise Phenyl oder Naphthyl, insbesondere Phenyl.

Heterocyclyl steht für gesättigte oder ungesättigte, sowie aromatische, ringförmige Verbindungen, in denen mindestens ein Ringglied ein Heteroatom, d. h. ein von Kohlenstoff verschiedenes Atom, ist. Enthält der Ring mehrere Heteroatome, können diese gleich oder verschieden sein. Heteroatome sind bevorzugt Sauerstoff, Stickstoff oder Schwefel. Gegebenenfalls bilden die ringförmigen Verbindungen mit weiteren carbocyclischen oder heterocyclischen, ankondensierten oder überbrückten Ringen gemeinsam ein polycyclisches Ringsystem. Bevorzugt sind mono- oder bicyclische Ringsysteme, insbesondere mono- oder bicyclische, aromatische Ringsysteme.

Cycloalkyl steht für gesättigte, carbocyclische, ringförmige Verbindungen, die gegebenenfalls mit weiteren carbocyclischen, ankondensierten oder überbrückten Ringen ein polycyclisches Ringsystem bilden.

Weiterhin wurde gefunden, daß man die neuen Halogenpyrimidine der allgemeinen Formel (I) erhält, wenn man

a) 2-(2-Hydroxy-phenyl)-2-methoxyimino-acetamide der Formel (II),

$$\begin{array}{c} L^{1} \\ \downarrow \\ H_{3}C \\ \end{array} \begin{array}{c} C \\ \downarrow \\ O \\ \end{array} \begin{array}{c} L^{3} \\ \downarrow \\ 0 \\ \end{array} \begin{array}{c} K \\ \downarrow \\ R \\ \end{array}$$

$$(II)$$

in welcher

20 R, L¹, L², L³ und L⁴ die oben angegebenen Bedeutungen haben,

mit einem substituierten Halogenpyrimidin der allgemeinen Formel (III),

$$Z \sim Q \xrightarrow{N} N Y^1$$
 (III)

in welcher

5

Z, Q und X die oben angegebenen Bedeutungen haben und

Y¹ für Halogen steht,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators, umsetzt, oder wenn man

b) Phenoxypyrimidine der allgemeinen Formel (IV)

in welcher

10 R, X, L¹, L², L³ und L⁴ die oben angegebenen Bedeutungen haben und

Y² für Halogen steht,

mit einer Ringverbindung der allgemeinen Formel (V),

Z-Q-H (V)

in welcher

15 Z und Q die oben angegebenen Bedeutungen haben,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators, umsetzt.

Schließlich wurde gefunden, daß die neuen Halogenpyrimidine der allgemeinen Formel (I) eine sehr starke fungizide Wirkung zeigen.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen können gegebenenfalls als Mischungen verschiedener möglicher isomerer Formen, insbesondere von Stereoisomeren, wie z. B. carbamoyl;

15

20

25

E- und Z-, vorliegen. Es werden sowohl die E- als auch die Z-Isomeren, wie auch beliebige Mischungen dieser Isomeren, beansprucht.

Gegenstand der Erfindung sind vorzugsweise Verbindungen der Formel (I), in welcher

- 5 Z für jeweils gegebenenfalls einfach bis zweifach durch Halogen, Alkyl, oder Hydroxy substituiertes Cycloalkyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen; für gegebenenfalls durch Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Heterocyclyl mit 3 bis 7 Ringgliedern; oder für jeweils gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl oder Naphthyl steht, wobei die möglichen Substituenten vorschieden substituiertes Phenyl oder Naphthyl steht, wobei die möglichen Substituenten vorschieden substituiertes Phenyl oder Naphthyl steht, wobei die möglichen Substituenten vorschieden substituiertes Phenyl oder Naphthyl steht, wobei die möglichen Substituenten vorschieden substituiertes Phenyl oder Naphthyl steht, wobei die möglichen Substituenten vorschieden substituiertes Phenyl oder Naphthyl steht vorschieden substituiertes Phenyl oder Naphthyl steht vorschieden substituerten vorschieden substituertes Phenyl oder Naphthyl steht vorschieden substituerten vorschieden substituertes Phenyl oder Naphthyl steht vorschieden substituerten vorschieden substituer
 - stituiertes Phenyl oder Naphthyl steht, wobei die möglichen Substituenten vorzugsweise aus der nachstehenden Aufzählung ausgewählt sind:
 Halogen, Cyano, Nitro, Amino, Hydroxy, Formyl, Carboxy, Carbamoyl, Thio-
 - jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Hydroxyalkyl, Oxoalkyl, Alkoxy, Alkoxyalkyl, Alkylthioalkyl, Dialkoxyalkyl, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkyl-

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl oder Alkenyloxy mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen;

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl oder Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen;

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkenyl oder Halogenalkenyloxy mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 11 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen;

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkylamino, Dialkylamino,

sulfonyl mit jeweils 1 bis 8 Kohlenstoffatomen;

Alkylcarbonyl, Alkylcarbonyloxy, Alkoxycarbonyl, Alkylaminocarbonyl, Dialkylaminocarbonyl, Dialkylaminocarbonyloxy, Alkenylcarbonyl oder Alkinylcarbonyl, mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den jeweiligen Kohlenwasserstoffketten;

Cycloalkyl oder Cycloalkyloxy mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen;

10

15

25

jeweils gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Oxo, Methyl, Trifluormethyl oder Ethyl substituiertes, jeweils zweifach verknüpftes Alkylen mit 3 oder 4 Kohlenstoffatomen, Oxyalkylen mit 2 oder 3 Kohlenstoffatomen oder Dioxyalkylen mit 1 oder 2 Kohlenstoffatomen;

oder eine Gruppierung A^{1} , worin

- A¹ für Wasserstoff, Hydroxy oder Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder Cycloalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen steht und
- A² für Hydroxy, Amino, Methylamino, Phenyl, Benzyl oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Hydroxy, Alkoxy, Alkylthio, Alkylamino, Dialkylamino oder Phenyl substituiertes Alkyl oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, oder für Alkenyloxy oder Alkinyloxy mit jeweils 2 bis 4 Kohlenstoffatomen steht,

sowie jeweils gegebenenfalls im Ringteil einfach bis dreifach durch Halogen, und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Phenyl, Phenoxy, Phenyllthio, Benzoyl, Benzoylethenyl, Cinnamoyl, Heterocyclyl oder Phenylalkyl, Phenylalkyloxy, Phenylalkylthio, oder Heterocyclylalkyl, mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen in den jeweiligen Alkylteilen,

- R für Wasserstoff oder Methyl steht,
- 20 Q für Sauerstoff oder Schwefel steht,
 - X für Fluor, Chlor, Brom oder Iod steht und
 - L¹, L², L³ und L⁴ gleich oder verschieden sind und unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, Halogen, Cyano, Nitro, jeweils gegebenenfalls durch 1 bis 5 Halogenatome substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen stehen.

Die Erfindung betrifft insbesondere Verbindungen der Formel (I), in welcher

Z für jeweils gegebenenfalls einfach bis zweifach durch Fluor, Chlor, Methyl, Ethyl oder Hydroxy substituiertes Cyclopentyl oder Cyclohexyl;

10

15

20

25

für gegebenenfalls durch Methyl oder Ethyl substituiertes Thienyl, Pyridyl oder Furyl;

oder für jeweils gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl oder Naphthyl steht, wobei die möglichen Substituenten vorzugsweise aus der nachstehenden Aufzählung ausgewählt sind:

Fluor, Chlor, Brom, Iod, Cyano, Nitro, Amino, Hydroxy, Formyl, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl

Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, 1-, 2-, 3-, neo-Pentyl, 1-, 2-, 3-, 4-(2-Methylbutyl), 1-, 2-, 3-Hexyl, 1-, 2-, 3-, 4-, 5-(2-Methylpentyl), 1-, 2-, 3-(3-Methylpentyl), 2-Ethylbutyl, 1-, 3-, 4-(2,2-Dimetylbutyl), 1-, 2-(2,3-Dimethylbutyl), Hydroxymethyl, Hydroxymethyl, 3-Oxobutyl, Methoxymethyl, Dimethoxymethyl,

Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy,

Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl oder Ethylsulfonyl,

Vinyl, Allyl, 2-Methylallyl, Propen-1-yl, Crotonyl, Propargyl, Vinyloxy, Allyloxy, 2-Methylallyloxy, Propen-1-yloxy, Crotonyloxy, Propargyloxy;

Trifluormethyl, Trifluorethyl,

Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Difluorchlormethoxy, Trifluorethoxy, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Difluorchlormethylthio, Trifluormethylsulfonyl,

Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, Dimethylamino, Diethylamino,

Acetyl, Propionyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, Methylaminocarbonyl, Ethylaminocarbonyl, Dimethylaminocarbonyl, Diethylaminocarbonyloxy, Diethylaminocarbonyloxy, Benzylaminocarbonyl, Acryloyl, Propioloyl,

Cyclopentyl, Cyclohexyl,

20

25

jeweils gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Oxo, Methyl oder Trifluormethyl substituiertes, jeweils zweifach verknüpftes Propandiyl, Ethylenoxy, Methylendioxy, Ethylendioxy

oder eine Gruppierung
$$A^{1}$$
, wobei A^{2} ,

5 A¹ für Wasserstoff, Methyl oder Hydroxy steht und

A² für Hydroxy, Methoxy, Ethoxy, Amino, Methylamino, Phenyl, Benzyl oder Hydroxyethyl steht, sowie

jeweils gegebenenfalls im Ringteil einfach bis dreifach durch Halogen, und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoff-atomen substituiertes Phenyl, Phenoxy, Phenyllthio, Benzoyl, Benzoylethenyl, Cinnamoyl, Benzyl, Phenylethyl, Phenylpropyl, Benzyloxy, Benzylthio, 5,6-Dihydro-1,4,2-dioxazin-3-ylmethyl, Triazolylmethyl, Benzoxazol-2-ylmethyl, 1,3-Dioxan-2-yl, Benzimidazol-2-yl, Dioxol-2-yl, Oxadiazolyl,

- R für Wasserstoff oder insbesondere Methyl steht,
- 15 Q für Sauerstoff oder Schwefel steht,
 - X für Fluor oder Chlor steht und
 - L¹, L², L³ und L⁴ gleich oder verschieden sind und unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, Methyl, Ethyl, noder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl oder Ethylsulfonyl, Trifluormethyl, Trifluorethyl, Difluormethoxy, Trifluormethyly, Difluormethylthio, Difluorchlormethylthio, Trifluormethylsulfinyl oder Trifluormethylsulfonyl stehen.

In einer ganz besonders bevorzugten Gruppe von Verbindungen steht Z für gegebenenfalls substituiertes Phenyl.

In einer weiteren ganz besonders bevorzugten Gruppe von Verbindungen stehen

L¹ und L³ unabhängig voneinander für Methyl und insbesondere Wasserstoff und

15

L² und L⁴ für Wasserstoff.

Insbesondere sind Verbindungen der Formel (I) bevorzugt in denen X für Fluor steht.

Die oben aufgeführten allgemeinen oder in Vorzugsbereichen angegebenen Restedefinitionen gelten sowohl für die Endprodukte der Formel (I) als auch entsprechend für die jeweils zur Herstellung benötigten Ausgangsstoffe bzw. Zwischenprodukte.

Die in den jeweiligen Kombinationen bzw. bevorzugten Kombinationen von Resten im einzelnen für diese Reste angegebenen Restedefinitionen werden unabhängig von der jeweilig angegebenen Kombination, beliebig auch durch Restedefinitionen anderer Vorzugsbereiche ersetzt.

Diese Restedefinitionen können untereinander, also auch zwischen den angegebenen Bereichen bevorzugter Verbindungen, beliebig kombiniert werden.

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens a) als Ausgangsstoffe benötigten 2-(2-Hydroxy-phenyl)-2-methoxyimino-acetamide sind durch die Formel (II) allgemein definiert. In dieser Formel (II) haben R, L¹, L², L³ und L⁴ vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt bzw. als insbesondere bevorzugt für R, L¹, L², L³ und L⁴ angegeben wurden.

Die Ausgangsstoffe der Formel (II) sind bekannt und können nach bekannten Verfahren hergestellt werden (vergleiche z. B. WO-A 9524396).

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens a) weiterhin als Ausgangsstoffe benötigten Halogenpyrimidine sind durch die Formel (III) allgemein definiert. In dieser Formel (III) haben Z, Q und X vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt bzw. als insbesondere bevorzugt für Z, Q und X angegeben wurden. Y¹ steht für Halogen, vorzugsweise für Fluor oder Chlor.

Die Ausgangsstoffe der Formel (III) sind bekannt und/oder können nach bekannten Methoden hergestellt werden (vergleiche z. B. DE-A 4340181; Chem.Ber., 90 <1957> 942, 951).

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens b) als Ausgangsstoffe benötigten Phenoxypyrimidine sind durch die Formel (IV) allgemein definiert. In dieser

10

15

20

25

Formel (IV) haben R, X, L^1 , L^2 , L^3 und L^4 vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt bzw. als insbesondere bevorzugt für R, X, L^1 , L^2 , L^3 und L^4 angegeben wurden. Y^2 steht für Halogen, vorzugsweise für Fluor oder Chlor.

Die Ausgangsstoffe der Formel (IV) sind neu und ebenfalls Gegenstand der vorliegenden Anmeldung.

Die Phenoxypyrimidine der allgemeinen Formel (IV) werden erhalten (Verfahren b-1), wenn man 2-(2-Hydroxy-phenyl)-2-methoxyimino-acetamide der Formel (II) mit einem Trihalogenpyrimidin der allgemeinen Formel (VI)

$$Y^{2} \xrightarrow{X} Y^{1}$$

$$X \qquad (VI)$$

in welcher

X, Y¹ und Y² gleich oder verschieden sind und jeweils für Halogen stehen,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators, umsetzt.

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens b-1) als Ausgangsstoffe benötigten Hydroxyverbindungen der Formel (II) sind bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung des erfindungsgemäßen Verfahrens a) beschrieben worden.

Die weiterhin zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens b-1) als Ausgangsstoffe benötigten Trihalogenpyrimidine sind durch die Formel (VI) allgemein definiert. In dieser Formel (VI) stehen X, Y¹ und Y² für Halogen, vorzugsweise für Fluor oder Chlor.

Die Trihalogenpyrimidine sind bekannt und/oder können nach bekannten Methoden hergestellt werden (vergleiche z. B. Chesterfield et al., J. Chem. Soc., 1955; 3478, 3480).

Die weiterhin zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens b) als Ausgangsstoffe benötigten Ringverbindungen sind durch die Formel (V) allgemein definiert. In

dieser Formel (V) haben Z und Q vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt bzw. als insbesondere bevorzugt für Z und Q angegeben wurden.

Die Ringverbindungen der Formel (V) sind bekannte Synthesechemikalien oder können nach einfachen Methoden hergestellt werden.

Als Verdünnungsmittel zur Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren a), b) und b-1) kommen alle inerten organischen Lösungsmittel in Betracht. Hierzu gehören vorzugsweise Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Methyl-t-butylether, Methyl-t-Amylether, Dioxan, Tetrahydrofuran, 1,2- Dimethoxyethan, 1,2-Diethoxyethan oder Anisol, Nitrile, wie Acetonitril, Propionitril, n- oder i-Butyronitril oder Benzonitril, Amide, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methylformanilid, N-Methylpyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid; Sulfoxide, wie Dimethylsulfoxid; oder Sulfone, wie Sulfolan.

Die erfindungsgemäßen Verfahren a), b) und b-1) werden gegebenenfalls in Gegenwart eines geeigneten Säureakzeptors durchgeführt. Als solche kommen alle üblichen anorganischen oder organischen Basen infrage. Hierzu gehören vorzugsweise Erdalkalimetall- oder Alkalimetallhydride, -hydroxide, -alkoholate, -carbonate oder -hydrogencarbonate, wie beispielsweise Natriumhydrid, Natriumamid, Kalium-tert.butylat, Natriumhydroxid, Kaliumhydroxid, Natriumcarbonat, Kaliumcarbonat, Kaliumhydrogencarbonat oder Natriumhydrogencarbonat.

Als Katalysatoren für die erfindungsgemäßen Verfahren a), b) und b-1) eignen sich alle Kupfer(I)-Salze, wie beispielsweise Kupfer(I)-chlorid, Kupfer(I)-bromid oder Kupfer(I)-iodid.

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren a), b) und b-1) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen von -20°C bis 100°C, vorzugsweise bei Temperaturen von -10°C bis 80°C.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens a) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (I) setzt man pro Mol des 2-(2-Hydroxy-phenyl)-2-methoxyiminoacetamides der Formel (II) im allgemeinen 0,5 bis 15 Mol, vorzugsweise 0,8 bis 8 Mol
substituiertes Halogenpyrimidin der Formel (III) ein.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens b) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (I) setzt man pro Mol des Phenoxypyrimidins der Formel (IV) im allgemeinen 0,5 bis 15 Mol, vorzugsweise 0,8 bis 8 Mol einer Ringverbindung der allgemeinen Formel (V) ein.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens b-1) zur Herstellung der Ver-5 bindungen der Formel (IV) setzt man pro Mol des 2-(2-Hydroxy-phenyl)-2methoxyimino-acetamides der Formel (II) im allgemeinen 1 bis 15 Mol, vorzugsweise 2 bis 8 Mol eines Trihalogenpyrimidins der allgemeinen Formel (VI) ein.

Alle erfindungsgemäßen Verfahren werden im allgemeinen unter Normaldruck durch-10 geführt. Es ist jedoch auch möglich, unter erhöhtem oder vermindertem Druck - im allgemeinen zwischen 0,1 bar und 10 bar - zu arbeiten.

Die Reaktionsdurchführung, Aufarbeitung und Isolierung der Reaktionsprodukte erfolgt nach allgemein üblichen Verfahren (vergleiche auch die Herstellungsbeispiele).

Die erfindungsgemäßen Stoffe weisen eine starke mikrobizide Wirkung auf und 15 können zur Bekämpfung von unerwünschten Mikroorganismen, wie Fungi und Bakteria, im Pflanzenschutz und im Materialschutz eingesetzt werden.

Fungizide lassen sich im Pflanzenschutz zur Bekämpfung von Plasmodiophoromycetes, Oomycetes, Chytridiomycetes, Zygomycetes, Ascomycetes, Basidiomycetes und Deuteromycetes einsetzen.

20 Bakterizide lassen sich im Pflanzenschutz zur Bekämpfung von Psdeudomonadaceae. Rhizobiaceae, Enterobacteriaceae, Corynebacteriaceae und Streptomycetaceae einsetzen.

Beispielhaft aber nicht begrenzend seien einige Erreger von pilzlichen und bakteriellen Erkrankungen, die unter die oben aufgezählten Oberbegriffe fallen, genannt:

- 25 Xanthomonas-Arten, wie beispielsweise Xanthomonas campestris pv. oryzae; Pseudomonas-Arten, wie beispielsweise Pseudomonas syringae pv. lachrymans; Erwinia-Arten, wie beispielsweise Erwinia amylovora; Pythium-Arten, wie beispielsweise Pythium ultimum; Phytophthora-Arten, wie beispielsweise Phytophthora infestans;
- 30 Pseudoperonospora-Arten, wie beispielsweise Pseudoperonospora humuli oder Pseudoperonospora cubensis;

Plasmopara-Arten, wie beispielsweise Plasmopara viticola;

Bremia-Arten, wie beispielsweise Bremia lactucae;

Peronospora-Arten, wie beispielsweise Peronospora pisi oder P. brassicae;

Erysiphe-Arten, wie beispielsweise Erysiphe graminis:

5 Sphaerotheca-Arten, wie beispielsweise Sphaerotheca fuliginea;

Podosphaera-Arten, wie beispielsweise Podosphaera leucotricha;

Venturia-Arten, wie beispielsweise Venturia inaequalis;

Pyrenophora-Arten, wie beispielsweise Pyrenophora teres oder P. graminea

(Konidienform: Drechslera, Syn: Helminthosporium);

10 Cochliobolus-Arten, wie beispielsweise Cochliobolus sativus

(Konidienform: Drechslera, Syn: Helminthosporium);

Uromyces-Arten, wie beispielsweise Uromyces appendiculatus:

Puccinia-Arten, wie beispielsweise Puccinia recondita;

Sclerotinia-Arten, wie beispielsweise Sclerotinia sclerotiorum;

Tilletia-Arten, wie beispielsweise Tilletia caries;

Ustilago-Arten, wie beispielsweise Ustilago nuda oder Ustilago avenae;

Pellicularia-Arten, wie beispielsweise Pellicularia sasakii;

Pyricularia-Arten, wie beispielsweise Pyricularia oryzae;

Fusarium-Arten, wie beispielsweise Fusarium culmorum;

Botrytis-Arten, wie beispielsweise Botrytis cinerea;

Septoria-Arten, wie beispielsweise Septoria nodorum;

Leptosphaeria-Arten, wie beispielsweise Leptosphaeria nodorum;

Cercospora-Arten, wie beispielsweise Cercospora canescens;

Alternaria-Arten, wie beispielsweise Alternaria brassicae;

25 Pseudocercosporella-Arten, wie beispielsweise Pseudocercosporella herpotrichoides.

Die gute Pflanzenverträglichkeit der Wirkstoffe in den zur Bekämpfung von Pflanzenkrankheiten notwendigen Konzentrationen erlaubt eine Behandlung von oberirdischen Pflanzenteilen, von Pflanz- und Saatgut, und des Bodens.

Dabei lassen sich die erfindungsgemäßen Wirkstoffe mit besonders gutem Erfolg zur Bekämpfung von Getreidekrankheiten, wie beispielsweise gegen Erysiphe-Arten, Puccinia-Arten, Fusarium-Arten und Pyrenophora-Arten, von Krankheiten im Wein-, Obst- und Gemüseanbau, wie beispielsweise gegen Venturia-, Sphaerotheca- und Plasmopara-Arten, Phytophthora-Arten oder von Reiskrankheiten, wie beispielsweise gegen Pyricularia-Arten, einsetzen. Mit gutem Erfolg werden auch weitere Getreide-krankheiten, wie beispielsweise Septoria-, Pyrenophora- oder Cochliobolus-Arten,

WO 98/21189 PCT/EP97/05954 - 13 -

bekämpft. Ferner lassen sich die erfindungsgemäßen Verbindungen auch zur Steigerung des Ernteertrags von Kulturpflanzen einsetzen.

Die Wirkstoffe können in Abhängigkeit von ihren jeweiligen physikalischen und/oder chemischen Eigenschaften in die üblichen Formulierungen überführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Suspensionen, Pulver, Schäume, Pasten, Granulate, Aerosole, Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen und in Hüllmassen für Saatgut, sowie ULV-Kalt- und Warmnebel-Formulierungen.

5

10

15

20

25

30

35

Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z.B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln, unter Druck stehenden verflüssigten Gasen und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaumerzeugenden Mitteln. Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im wesentlichen in Frage: Aromaten, wie Xylol, Toluol oder Alkylnaphthaline, chlorierte Aromaten oder chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chlorethylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfraktionen, Alkohole, wie Butanol oder Glycol sowie deren Ether und Ester, Ketone, wie Aceton, Methyleton, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid, sowie Wasser. Mit verflüssigten gasförmigen Streckmitteln oder Trägerstoffen sind solche Flüssigkeiten gemeint, welche bei normaler Temperatur und unter Normaldruck gasförmig sind, z.B. Aerosol-Treibgase, wie Halogenkohlenwasserstoffe sowie Butan, Propan, Stickstoff und Kohlendioxid. Als feste Trägerstoffe kommen in Frage: z.B. natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate. Als feste Trägerstoffe für Granulate kommen in Frage: z.B. gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnußschalen, Maiskolben und Tabakstengel. Als Emulgier und/oder schaumerzeugende Mittel kommen in Frage: z.B. nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyethylen-Fettsäureester, Polyoxyethylen-Fettalkoholether, z.B. Alkylarylpolyglycolether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysate. Als Dispergiermittel kommen in Frage: z.B. Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.

15

Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche und synthetische pulverige, körnige oder latexformige Polymere verwendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipide, wie Kephaline und Lecithine, und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und vegetabile Öle sein.

Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyaninfarbstoffe und Spurennährstoffe, wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.

Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als solche oder in ihren Formulierungen auch in Mischung mit bekannten Fungiziden, Bakteriziden, Akariziden, Nematiziden oder Insektiziden verwendet werden, um so z.B. das Wirkungsspektrum zu verbreitern oder Resistenzentwicklungen vorzubeugen. In vielen Fällen erhält man dabei synergistische Effekte, d.h. die Wirksamkeit der Mischung ist größer als die Wirksamkeit der Einzelkomponenten.

Als Mischpartner kommen zum Beispiel folgende Verbindungen in Frage:

20 Fungizide:

Aldimorph, Ampropylfos, Ampropylfos-Kalium, Andoprim, Anilazin, Azaconazol, Azoxystrobin,

Benalaxyl, Benodanil, Benomyl, Benzamacril, Benzamacryl-isobutyl, Bialaphos, Binapacryl, Biphenyl, Bitertanol, Blasticdiin-S, Bromuconazol, Bupirimat, Buthiobat,

- Calciumpolysulfid, Capsimycin, Captafol, Captan, Carbendazim, Carboxin, Carvon, Chinomethionat(Quinomethionat), Chlobenthiazon, Chlorfenazol, Chloroneb, Chloropicrin, Chlorothalonil, Chlozolinat, Clozylacon, Cufraneb, Cymoxanil, Cyproconazol, Cyprodinil, Cyprofuram,
- Debacarb, Dichlorophen, Diclobutrazol, Diclofluanid, Diclomezin, Dicloran,
 Diethofencarb, Difenoconazol, Dimethirimol, Dimethomorph, Diniconazol,
 Diniconazol-M, Dinocap, Diphenylamin, Dipyrithione, Ditalimfos, Dithianon,
 Dodemorph, Dodine, Drazoxolon,

Ediphenphos, Epoxiconazol, Etaconazol, Ethirimol, Etridiazol,

WO 98/21189 PCT/EP97/05954 - 15 -

Famoxadon, Fenapanil, Fenarimol, Fenbuconazol, Fenfuram, Fenitropan, Fenpiclonil, Fenpropidin, Fenpropimorph, Fentinacetat, Fentinhydroxyd, Ferbam, Ferimzon, Fluazinam, Flumetover, Fluoromid, Fluquinconazol, Flurprimidol, Flusilazol, Flusulfamid, Flutolanil, Flutriafol, Folpet, Fosetyl-Alminium, Fosetyl-Natrium, Fthalid, Fuberidazol, Furalaxyl, Furametpyr, Furcarbonil, Furconazol, Furconazol-cis.

Fthalid, Fuberidazol, Furalaxyl, Furametpyr, Furcarbonil, Furconazol, Furconazol-cis, Furmecyclox,

Guazatin,

5

10

Hexachlorobenzol, Hexaconazol, Hymexazol,

Imazalil, Imibenconazol, Iminoctadin, Iminoctadinealbesilate, Iminoctadinetriacetate, Iodocarb, Ipconazol, Iprobenfos(IBP), Iprodione, Irumamycin, Isoprothiolan,

Isovaledione,

Kasugamycin, Kresoxim-methyl, Kupfer-Zubereitungen, wie: Kupferhydroxid, Kupfernaphthenat, Kupferoxychlorid, Kupfersulfat, Kupferoxid, Oxin-Kupfer und Bordeaux-Mischung,

Mancopper, Mancozeb, Maneb, Meferimzone, Mepanipyrim, Mepronil, Metalaxyl, Metconazol, Methasulfocarb, Methfuroxam, Metiram, Metomeclam, Metsulfovax, Mildiomycin, Myclobutanil, Myclozolin, Nickel-dimethyldithiocarbamat, Nitrothal-isopropyl, Nuarimol.

Ofurace, Oxadixyl, Oxamocarb, Oxolinicacid, Oxycarboxim, Oxyfenthiin,

Paclobutrazol, Pefurazoat, Penconazol, Pencycuron, Phosdiphen, Pimaricin, Piperalin, Polyoxin, Polyoxorim, Probenazol, Prochloraz, Procymidon, Propamocarb, Propanosine-Natrium, Propiconazol, Propineb, Pyrazophos, Pyrifenox, Pyrimethanil, Pyroquilon, Pyroxyfur,

Quinconazol, Quintozen(PCNB),

25 Schwefel und Schwefel-Zubereitungen,

Tebuconazol, Tecloftalam, Tecnazen, Tetcyclacis, Tetraconazol, Thiabendazol, Thicyofen, Thifluzamide, Thiophanate-methyl, Thiram, Tioxymid, Tolclofos-methyl, Tolylfluanid, Triadimefon, Triadimenol, Triazbutil, Triazoxid, Trichlamid, Tricyclazol, Tridemorph, Triflumizol, Triforin, Triticonazol,

30 Uniconazol,

Validamycin A, Vinclozolin, Viniconazol,

Zarilamid, Zineb, Ziram sowie

Dagger G.

OK-8705,

35 OK-8801,

 α -(1,1-Dimethylethyl)- β -(2-phenoxyethyl)-1H-1,2,4-triazol-1-ethanol, α -(2,4-Dichlorphenyl)- β -fluor- β -propyl-1H-1,2,4-triazol-1-ethanol,

- α -(2,4-Dichlorphenyl)- β -methoxy- α -methyl-1H-1,2,4-triazol-1-ethanol, α -(5-Methyl-1,3-dioxan-5-yl)- β -[[4-(trifluormethyl)-phenyl]-methylen]-1H-1,2,4-triazol-1-ethanol,
- (5RS,6RS)-6-Hydroxy-2,2,7,7-tetramethyl-5-(1H-1,2,4-triazol-1-yl)-3-octanon,
- 5 (E)-α-(Methoxyimino)-N-methyl-2-phenoxy-phenylacetamid,
 - {2-Methyl-1-[[[1-(4-methylphenyl)ethyl]amino]carbonyl]propyl}-carbaminsäure-1-isopropylester
 - 1-(2,4-Dichlorphenyl)-2-(1H-1,2,4-triazol-1-yl)ethanon-O-(phenylmethyl)-oxim.
 - 1-(2-Methyl-1-naphthalenyl)-1H-pyrrol-2,5-dion,
- 10 1-(3,5-Dichlorphenyl)-3-(2-propenyl)-2,5-pyrrolidindion,
 - 1-[(Diiodmethyl)-sulfonyl]-4-methyl-benzol,
 - 1-[[2-(2,4-Dichlorphenyl)-1,3-dioxolan-2-yl]-methyl]-1H-imidazol,
 - 1-[[2-(4-Chlorphenyl)-3-phenyloxiranyl]-methyl]-1H-1,2,4-triazol,
 - 1-[1-[2-[(2,4-Dichlorphenyl)methoxy]phenyl]ethenyl]-1H-imidazol,
- 15 1-Methyl-5-nonyl-2-(phenylmethyl)-3-pyrrolidinol,
 - 2',6'-Dibrom-2-methyl-4'-trifluormethoxy-4'-trifluor-methyl-1,3-thiazol-5-carboxanilid.
 - 2,2-Dichlor-N-[1-(4-chlorphenyl)ethyl]-1-ethyl-3-methyl-cyclopropancarboxamid,
 - 2,6-Dichlor-5-(methylthio)-4-pyrimidinyl-thiocyanat,
- 20 2,6-Dichlor-N-(4-trifluormethylbenzyl)-benzamid,
 - 2,6-Dichlor-N-[[4-(trifluormethyl)phenyl]methyl]-benzamid,
 - 2-(2,3,3-Triiod-2-propenyl)-2H-tetrazol,
 - 2-[(1-Methylethyl)sulfonyl]-5-(trichlormethyl)-1,3,4-thiadiazol,
 - 2-[[6-Deoxy-4-O-(4-O-methyl-β-D-glycopyranosyl)-α-D-glucopyranosyl]-amino]-4-
- 25 methoxy-1H-pyrrolo[2,3-d]pyrimidin-5-carbonitril,
 - 2-Aminobutan,
 - 2-Brom-2-(brommethyl)-pentandinitril,
 - 2-Chlor-N-(2,3-dihydro-1,1,3-trimethyl-1H-inden-4-yl)-3-pyridincarboxamid,
 - 2-Chlor-N-(2,6-dimethylphenyl)-N-(isothiocyanatomethyl)-acetamid,
- 30 2-Phenylphenol(OPP),
 - 3,4-Dichlor-1-[4-(difluormethoxy)-phenyl]-1H-pyrrol-2,5-dion,
 - 3,5-Dichlor-N-[cyan[(1-methyl-2-propynyl)oxy]methyl]-benzamid.
 - 3-(1,1-Dimethylpropyl-1-oxo-1H-inden-2-carbonitril,
 - 3-[2-(4-Chlorphenyl)-5-ethoxy-3-isoxazolidinyl]-pyridin,
- 35 '4-Chlor-2-cyan-N,N-dimethyl-5-(4-methylphenyl)-1H-imidazol-1-sulfonamid,
 - 4-Methyl-tetrazolo[1,5-a]quinazolin-5(4H)-on,
 - 8-(1,1-Dimethylethyl)-N-ethyl-N-propyl-1,4-dioxaspiro[4.5]decan-2-methanamin,

- 8-Hydroxychinolinsulfat,
- 9H-Xanthen-9-carbonsäure-2-[(phenylamino)-carbonyl]-hydrazid.
- bis-(1-Methylethyl)-3-methyl-4-[(3-methylbenzoyl)oxy]-2,5-thiophendicarboxylat,
- cis-1-(4-Chlorphenyl)-2-(1H-1,2,4-triazol-1-yl)-cycloheptanol,
- 5 cis-4-[3-[4-(1,1-Dimethylpropyl)-phenyl-2-methylpropyl]-2,6-dimethyl-morpholin-hydrochlorid,
 - Ethyl-[(4-chlorphenyl)-azo]-cyanoacetat,
 - Kaliumhydrogencarbonat,
 - Methantetrathiol, -Natriumsalz,
- 10 Methyl-1-(2,3-dihydro-2,2-dimethyl-1H-inden-1-yl)-1H-imidazol-5-carboxylat, Methyl-N-(2,6-dimethylphenyl)-N-(5-isoxazolylcarbonyl)-DL-alaninat,
 - Methyl-N-(chloracetyl)-N-(2,6-dimethylphenyl)-DL-alaninat,
 - N-(2,3-Dichlor-4-hydroxyphenyl)-1-methyl-cyclohexancarboxamid.
 - N-(2,6-Dimethylphenyl)-2-methoxy-N-(tetrahydro-2-oxo-3-furanyl)-acetamid,
- N-(2,6-Dimethylphenyl)-2-methoxy-N-(tetrahydro-2-oxo-3-thienyl)-acetamid,
 - N-(2-Chlor-4-nitrophenyl)-4-methyl-3-nitro-benzolsulfonamid,
 - N-(4-Cyclohexylphenyl)-1,4,5,6-tetrahydro-2-pyrimidinamin,
 - N-(4-Hexylphenyl)-1,4,5,6-tetrahydro-2-pyrimidinamin,
 - N-(5-Chlor-2-methylphenyl)-2-methoxy-N-(2-oxo-3-oxazolidinyl)-acetamid,
- 20 N-(6-Methoxy)-3-pyridinyl)-cyclopropancarboxamid,
 - N-[2,2,2-Trichlor-1-[(chloracetyl)-amino]-ethyl]-benzamid,
 - N-[3-Chlor-4,5-bis(2-propinyloxy)-phenyl]-N'-methoxy-methanimidamid,
 - N-Formyl-N-hydroxy-DL-alanin, -Natriumsalz,
 - O,O-Diethyl-[2-(dipropylamino)-2-oxoethyl]-ethylphosphoramidothioat.
- 25 O-Methyl-S-phenyl-phenylpropylphosphoramidothioat,
 - S-Methyl-1,2,3-benzothiadiazol-7-carbothioat,
 - spiro[2H]-1-Benzopyran-2,1'(3'H)-isobenzofuran]-3'-on,

Bakterizide:

Bromopol, Dichlorophen, Nitrapyrin, Nickel-dimethyldithiocarbamat, Kasugamycin,

Octhilinon, Furancarbonsäure, Oxytetracyclin, Probenazol, Streptomycin, Tecloftalam, Kupfersulfat und andere Kupfer-Zubereitungen.

Insektizide / Akarizide / Nematizide:

- Abamectin, Acephat, Acrinathrin, Alanycarb, Aldicarb, Alphamethrin, Amitraz, Avermectin, AZ 60541, Azadirachtin, Azinphos A, Azinphos M, Azocyclotin,
- Bacillus thuringiensis, 4-Bromo-2-(4-chlorphenyl)-1-(ethoxymethyl)-5-(trifluoro-methyl)-1H-pyrrole-3-carbonitrile, Bendiocarb, Benfuracarb, Bensultap, Betacyflu-

thrin, Bifenthrin, BPMC, Brofenprox, Bromophos A, Bufencarb, Buprofezin, Butocarboxin, Butylpyridaben,

Cadusafos, Carbaryl, Carbofuran, Carbophenothion, Carbosulfan, Cartap, Chloethocarb, Chlorethoxyfos, Chlorfenapyr, Chlorfenvinphos, Chlorfluazuron, Chlormephos,

N-[(6-Chloro-3-pyridinyl)-methyl]-N'-cyano-N-methyl-ethanimidamide, Chlorpyrifos, Chlorpyrifos M, Cis-Resmethrin, Clocythrin, Clofentezin, Cyanophos, Cycloprothrin, Cyfluthrin, Cyhalothrin, Cyhexatin, Cypermethrin, Cyromazin,

Deltamethrin, Demeton M, Demeton S, Demeton-S-methyl, Diafenthiuron, Diazinon, Dichlofenthion, Dichlorvos, Dicliphos, Dicrotophos, Diethion, Diflubenzuron, Dime-

10 thoat,

Dimethylvinphos, Dioxathion, Disulfoton,

Edifenphos, Emamectin, Esfenvalerat, Ethiofencarb, Ethion, Ethofenprox, Ethoprophos, Etrimphos,

Fenamiphos, Fenazaquin, Fenbutatinoxid, Fenitrothion, Fenobucarb, Fenothiocarb,

Fenoxycarb, Fenpropathrin, Fenpyrad, Fenpyroximat, Fenthion, Fenvalerate, Fipronil, Fluazinam, Fluazuron, Flucycloxuron, Flucythrinat, Flufenoxuron, Flufenprox, Fluvalinate, Fonophos, Formothion, Fosthiazat, Fubfenprox, Furathiocarb, HCH, Heptenophos, Hexaflumuron, Hexythiazox,

non, neptenophos, nexahumulon, nexythazox,

Imidacloprid, Iprobenfos, Isazophos, Isofenphos, Isoprocarb, Isoxathion, Ivermectin,

20 Lamda-cyhalothrin, Lufenuron,

Malathion, Mecarbam, Mervinphos, Mesulfenphos, Metaldehyd, Methacrifos, Methamidophos, Methidathion, Methiocarb, Methomyl, Metolcarb, Milbemectin, Monocrotophos, Moxidectin,

Naled, NC 184, Nitenpyram

Omethoat, Oxamyl, Oxydemethon M, Oxydeprofos,

Parathion A, Parathion M, Permethrin, Phenthoat, Phorat, Phosalon, Phosmet, Phosphamidon, Phoxim, Pirimicarb, Pirimiphos M, Pirimiphos A, Profenophos, Promecarb, Propaphos, Propoxur, Prothiophos, Prothoat, Pymetrozin, Pyrachlophos, Pyridaphenthion, Pyresmethrin, Pyrethrum, Pyridaben, Pyrimidifen, Pyriproxifen,

30 Quinalphos,

Salithion, Sebufos, Silafluofen, Sulfotep, Sulprofos,

Tebufenozide, Tebufenpyrad, Tebupirimphos, Teflubenzuron, Tefluthrin, Temephos, Terbam, Terbufos, Tetrachlorvinphos, Thiafenox, Thiodicarb, Thiofanox, Thiomethon, Thionazin, Thuringiensin, Tralomethrin, Triarathen, Triazophos, Triazuron, Tri-

35 chlorfon, Triflumuron, Trimethacarb,

Vamidothion, XMC, Xylylcarb, Zetamethrin.

WO 98/21189

PCT/EP97/05954

Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Herbiziden oder mit Düngemitteln und Wachstumsregulatoren ist möglich.

Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihren handelsüblichen Formulierungen oder den daraus bereiteten Anwendungsformen, wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Spritzpulver, Pasten, lösliche Pulver, Stäubemittel und Granulate angewendet werden. Die Anwendung geschieht in üblicher Weise, z.B. durch Gießen, Verspritzen, Versprühen, Verstreuen, Verschäumen, Bestreichen usw.. Es ist ferner möglich die Wirkstoffe nach dem Ultra-Low-Volume-Verfahren auszubringen oder die Wirkstoffzubereitung oder der Wirkstoff selbst in den Boden zu injizieren. Es kann wird auch das Saatgut der Pflanzen behandelt werden.

Bei der Behandlung von Pflanzenteilen können die Wirkstoffkonzentrationen in den Anwendungsformen in einem größeren Bereich variiert werden: Sie liegen im allgemeinen zwischen 1 und 0,0001 Gew.-%, vorzugsweise zwischen 0,5 und 0,001 Gew.-%.

Bei der Saatgutbehandlung werden im allgemeinen Wirkstoffmengen von 0,001 bis 50 g je Kilogramm Saatgut, vorzugsweise 0,01 bis 10 g benötigt.

Bei der Behandlung des Bodens sind Wirkstoffkonzentrationen von 0,00001 bis 0,1 Gew.-%, vorzugsweise von 0,0001 bis 0,02 Gew.-% am Wirkungsort erforderlich.

15

Herstellungsbeispiele:

Beispiel 1

5

10

15

Verfahren a)

Zu einer Mischung aus 2 g (0,0096 Mol) 2-(2-Hydroxy-phenyl)-2-methoxyimino-N-methyl-acetamid und 2,3 g (0,0095 Mol) 4-(2-Chlorphenoxy)-5,6-difluorpyrimidin in 10 ml Dimethylformamid gibt man unter Kühlen 0,4 g (0,01 Mol) 60 %iges Natriumhydrid zu und rührt 12 Stunden bei 25°C. Man gießt das Reaktionsgemisch auf Wasser, extrahiert mit Dichlormethan, trocknet die organische Phase über Natriumsulfat und destilliert das Lösungsmittel im Vakuum ab. Der Rückstand wird mit einer Mischung aus gleichen Volumina Essigsäureethylester und Cyclohexan auf Kieselgel chromatographiert. Man erhält 2,1 g (48,3 % der Theorie) 2-{2-[6-(2-Chlorphenoxy)-5-fluor-pyrimidin-4-yloxy]-phenyl}-2-methoxyimino-N-methylacetamid.

¹H-NMR-Spektrum (CDCl₃/TMS): $\delta = 2,88/2,90$ (3H); 3,82 (3H); 6,68 (1H); 7,25-7,54 (8H); 8,05 (1H) ppm.

Beispiel 2

Verfahren b)

Zu einer Mischung aus 2 g (0,0062 Mol) 2-[2-(5,6-Difluorpyrimidin-4-yloxy)-phenyl]-2-methoxyimino-N-methyl-acetamid und 0,67 g (0,0062 Mol) 2-Methylphenol in 20 ml Dimethylformamid gibt man unter Kühlen 0,25 g (0,0062 Mol) 60 %iges Natriumhydrid zu und rührt 12 Stunden bei 25°C. Man gießt das Reaktionsgemisch auf Wasser, extrahiert mit Essigsäureethylester, trocknet die organische Phase über Natriumsulfat und destilliert das Lösungsmittel im Vakuum ab. Man erhält 1,5 g (58,9 %) 2-[2-(5-Fluor-6-o-tolyloxy-pyrimidin-4-yloxy)-phenyl]-2-methoxyimino-N-methyl-acetamid.

¹H-NMR-Spektrum (CDCl₃/TMS): $\delta = 2,21$ (3H); 2,89/2,90(3H); 3,84 (3H); 6,7 (1H, b); 7,06-7,53 (8H); 8,06 (1H) ppm.

Analog den Beispielen 1 bis 2, sowie entsprechend den Angaben in der allgemeinen Verfahrensbeschreibung, werden die in der nachstehenden Tabelle 1 genannten Verbindungen der Formel (Ia) erhalten.

Tabelle 1:

Besp Nr.	R	Q	х	R	Fp.	NMR *	LogP **
3	Phenyl	0	F	-CH ₃	107	3,85	2,77
4	2-Cyanphenyl	Ο	F	-CH ₃	128- 130	3,85	2,6
5	2-Methoxyphenyl	O	F	-CH ₃		3,83	2,72
2	2-Methylphenyl	O	F	-СН3		3,84	3,04
6	4-Chlorphenyl	O	F	-CH ₃		3,85	3,22
7	2-Acetylphenyl	0	F	-CH ₃	i	3,85	2,51
8	2-Allyloxyphenyl	0	F	-CH ₃		3,82	3,11
9	2-Propionyloxyphenyl	О	F	-CH ₃		3,85	2,83
10	2-Chlorphenyl	Ο	F	-H		3,87	2,79
11	2-Bromphenyl	O	F	-CH ₃		3,83	3,08
12	2-Fluorphenyl	Ο	F	-CH ₃		3,82	2,85
13	2,4-Dibromphenyl	O	F	-CH ₃		3,83	3,76
14	2,3-Dichlorphenyl	O	F	-CH ₃		3,83	3,45
15	2,4-Dichlorphenyl	0	F	-CH ₃		3,83	3,61
16	2,5-Dichlorphenyl	О	F	-CH ₃		3,83	3,53
17	2,6-Dichlorphenyl	0	F	-CH ₃		3,79	3,35
18	2,3-Dimethylphenyl	O	F	-CH ₃		3,77	3,30
19	2,4-Dimethylphenyl	O	F	-CH ₃		3,84	3,39
20	2,5-Dimethylphenyl	O	F	-CH ₃		3,76	3,52
21	2,6-Dimethylphenyl	О	F	-CH ₃		3,82	3,29

Besp Nr.	R	Q	х	R	Fp. (°C)	NMR *	LogP **
22	2-Chlor-4-methylphenyl	0	F	-CH ₃		3,82	3,41
23	2-Chlor-5-methylphenyl	0	F	-CH ₃		3,82	3,37
24	3-Chlor-2-methylphenyl	Ο	F	-СН3		3,84	3,50
25	4-Chlor-2-methylphenyl	Ο	F	-CH ₃			
26	2-Brom-4-chlorphenyl	O	F	-CH ₃		3,83	3,65
27	4-Brom-2-chlorphenyl	О	F	-CH ₃		3,82	3,70
28	Phenyl	S	F	-CH ₃	·	3,81	3,07

- *) Die ¹H-NMR-Spektren wurden in Deuterochloroform (CDCl₃) oder Hexadeuterodimethylsulfoxid (DMSO-d₆) mit Tetramethylsilan (TMS) als innerem Standard aufgenommen. Angegeben ist die chemische Verschiebung als δ-Wert in ppm.
- **) Die Bestimmung der logP-Werte erfolgte gemäß EEC-Directive 79/831 Annex V. A8 durch HPLC (Gradientenmethode, Acetonitril/0,1 % wäßrige Phosphorsäure)

Herstellung der Ausgangsstoffe nach Formel (II):

Beispiel (II-1):

5 g (0,028 Mol) Benzofuran-2,3-dion-3-(O-methyl-oxim) (WO-A 9524396) werden in 100 ml Tetrahydrofuran mit 20 ml 25 %iger wäßriger Ammoniaklösung 2 Stunden bei 20°C gerührt. Dann destilliert man das Lösungsmittel im Vakuum ab, gießt den Rückstand auf Wasser, extrahiert mit Essigsäureethylester, trocknet die organische Phase über Natriumsulfat und destilliert das Lösungsmittel im Vakuum ab. Man kristallisiert den Rückstand aus Ethanol um und erhält 2 g (36,4 % der Theorie) 2-(2-Hydroxy-phenyl)-2-methoxyimino-acetamid.

log p = 0.83.

GC/MS silyliert:

Retentions index = 1827

15 M = 341, 323, 307, 291, 149, 133, 192, 176, 135, 116, 89, 73, 45, 26.

Herstellung von Ausgangsstoffen nach Formel (III)

Beispiel (III-1)

10

15

20

25

Eine Lösung von 42,4 g (0,45 Mol) Phenol und 50,4 g (0,45 Mol) Kalium-tert.-butylat in 400 ml Tetrahydrofuran tropft man bei 0°C zu einer Lösung von 80 g (0,6 Mol) 4,5,6-Trifluorpyrimidin in 11 Tetrahydrofuran. Nach vollendeter Zugabe rührt man 30 Minuten bei 0°C, gießt dann das Reaktionsgemisch auf Wasser und extrahiert mit Essigsäureethylester. Man trocknet die organische Phase-über Natriumsulfat, engt im Vakuum ein und verrührt den Rückstand mit tiefsiedendem Petrolether. Man erhält 63,8 g (68,1 % der Theorie) 4-Phenoxy-5,6-difluorpyrimidin vom Schmelzpunkt 65 - 66°C.

Herstellung der Ausgangsstoffe nach Formel (IV):

Beispiel (IV-1)

5 g (0,024 Mol) 2-(2-Hydroxy-phenyl)-2-methoxyimino-N-methyl-acetamid werden in 30 ml Tetrahydrofuran gelöst und auf 0°C gekühlt. Man gibt portionsweise unter Rühren 2,7 g (0,024 Mol) Kalium-tert.-butylat zu. Bei 0°C tropft man die so erhaltene Lösung in eine Lösung von 4,5,6-Trifluorpyrimidin in 40 ml Tetrahydrofuran. Hierauf rührt man die Mischung eine Stunde bei 20°C. Dann destilliert man das Lösungsmittel im Vakuum ab, gießt den Rückstand auf Wasser, extrahiert mit Essigsäureethylester, trocknet die organische Phase über Natriumsulfat und destilliert das Lösungsmittel im Vakuum ab. Nach Verrühren mit Diethylether filtriert man 3,2 g (41,3 % der Theorie) kristallines 2-[2-(5,6-Difluor-pyrimidin-4-yloxy)-phenyl]-2-methoxyimino-N-methylacetamid ab.

¹H-NMR-Spektrum (CDCl₃/TMS): $\delta = 2,87/2,88$ (3H); 3,81 (3H); 6,67 (1H, b); 7,33-7,55 (4H); 8,19/8,20 (1H) ppm.

Herstellung eines Vorproduktes nach Formel (VI)

Beispiel (VI-1)

Aus einer Mischung von 609 g Kaliumfluorid in 2,3 l Sulfolan werden zur Trocknung 500 ml Flüssigkeit bei 145°C und 20 mbar abdestilliert. Anschließend werden 1054 g 5-Chlor-4,6-difluorpyrimidin (DE-A 3843558) und 25 g Tetraphenylphosphoniumbromid zugegeben, 5 bar Stickstoff aufgedrückt und 24 Stunden bei 240°C gerührt, wobei der Druck bis 11 bar steigt. Die Reaktionsmischung wird auf 80°C gekühlt und entspannt. Nun wird die Mischung bei Normaldruck wieder langsam erhitzt, wobei das Produkt abdestilliert. Hat die Sumpftemperatur 200°C erreicht, wird der Druck auf 150 mbar vermindert, um die Destillation zu beschleunigen und um weiteres Produkt zu erhalten. Insgesamt erhält man 664 g (70,7 % der Theorie) 4,5,6-Trifluorpyrimidin vom Siedepunkt 86 bis 87°C.

WO 98/21189

- 27 -

Anwendungsbeispiele

Beispiel A:

Plasmopara-Test (Reben) / protektiv

Lösungsmittel:

47 Gewichtsteile Aceton

5 Emulgator:

10

15

3 Gewichtsteile Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

PCT/EP97/05954

Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer wäßrigen Sporensuspension von *Plasmopara viticola* inokuliert und verbleiben dann 1 Tag in einer Inkubationskabine bei 20°C und 100% relativer Luftfeuchtigkeit. Anschließend werden die Pflanzen 5 Tage im Gewächshaus bei 21°C und ca. 90% Luftfeuchtigkeit aufgestellt. Die Pflanzen werden dann angefeuchtet und 1 Tag in eine Inkubationskabine gestellt.

6 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0% ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100% bedeutet, daß kein Befall beobachtet wird.

Bei diesem Test zeigen z.B. die folgenden Verbindungen der Herstellungsbeispiele (1), (2), (3), (12), (13), (14), (15), (16), (17), (18), (20), (22), (23), (24), (26), (27) und (28) bei einer beispielhaften Aufwandmenge an Wirkstoff von 100 g/ha einen Wirkungsgrad von 94% oder mehr im Vergleich zur unbehandelten Kontrolle.

Beispiel B:

Sphaerotheca-Test (Gurke) / protektiv

Lösungsmittel:

47 Gewichtsteile Aceton

Emulgator:

3 Gewichtsteile Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer wäßrigen Sporensuspension von Sphaerotheca fuliginea inokuliert. Die Pflanzen werden dann im Gewächshaus bei ca. 23°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 70 % im Gewächshaus aufgestellt.

10 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0% ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100% bedeutet, daß kein Befall beobachtet wird.

Bei diesem Test zeigt z.B. die folgenden Verbindungen der Herstellungsbeispiele (1), (2), (3), (6), (7), (9), (12), (13), (14), (15), (17), (18), (20), (21), (22), (23), (24), (26), (27) und (28) bei einer beispielhaften Aufwandmenge an Wirkstoff von 100 g/ha einen Wirkungsgrad von 91 % oder mehr im Vergleich zur unbehandelten Kontrolle.

Beispiel C:

Venturia-Test (Apfel) / protektiv

Lösungsmittel:

47 Gewichtsteile Aceton

Emulgator:

5

10

20

3 Gewichtsteile Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer wäßrigen Konidiensuspension des Apfelschorferregers *Venturia inaequalis* inokuliert und verbleiben dann 1 Tag bei ca. 20°C und 100 % relativer Luftfeuchtigkeit in einer Inkubationskabine.

Die Pflanzen werden dann im Gewächshaus bei ca. 21°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 90 % aufgestellt.

15 12 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0% ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100% bedeutet, daß kein Befall beobachtet wird.

Bei diesem Test zeigt z.B. die folgenden Verbindungen der Herstellungsbeispiele (2), (3), (4), (5), (6), (8), (9), (12), (14), (17), (18), (21) und (28) bei einer beispielhaften Aufwandmenge an Wirkstoff von 10 g/ha einen Wirkungsgrad von 96 % oder mehr im Vergleich zur unbehandelten Kontrolle.

Beispiel D:

Erysiphe-Test (Gerste) / protektiv

Lösungsmittel:

10 Gewichtsteile N-Methyl-pyrrolidon

Emulgator:

20

0,6 Gewichtsteile Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit besprüht man junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge.

Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit Sporen von Erysiphe graminis f.sp. hordei bestäubt.

Die Pflanzen werden in einem Gewächshaus bei einer Temperatur von ca. 20°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 80 % aufgestellt, um die Entwicklung von Mehltaupusteln zu begünstigen.

7 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0% ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100% bedeutet, daß kein Befall beobachtet wird.

Bei diesem Test zeigt z.B. die folgenden Verbindungen der Herstellungsbeispiele (2), (3) und (8) bei einer beispielhaften Wirkstoffaufwandmenge von 250 g/ha einen Wirkungsgrad von 100 % im Vergleich zur unbehandelten Kontrolle.

PCT/EP97/05954

Beispiel E

Erysiphe-Test (Gerste) / kurativ

5 Lösungsmittel:

10

15

25

10 Gew.-Teile N-Methyl-pyrrolidon

Emulgator:

0,6 Gew.-Teile Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Zur Prüfung auf kurative Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit Sporen von Erysiphe graminis f.sp. hordei bestäubt. 48 Stunden nach der Inokulation werden die Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht.

Die Pflanzen werden in einem Gewächshaus bei einer Temperatur von ca. 20°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 80 % aufgestellt, um die Entwicklung von Mehltaupusteln zu begünstigen.

7 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, daß kein Befall beobachtet wird.

Bei diesem Test zeigen die in den Beispielen (2), (3), (6), (9) und (10) aufgeführten erfindungsgemäßen Stoffe bei einer Aufwandmenge von 250 g/ha einen Wirkungsgrad von 90 % oder mehr.

Beispiel F:

Pyricularia-Test (Reis) / protektiv

Lösungsmittel:

12,5 Gewichtsteile Aceton

Emulgator:

10

15

20

Gewichtsteile Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 5 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel und verdünnt das Konzentrat mit Wasser und der angegebenen Menge Emulgator auf die gewünschte Konzentration.

Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit bespritzt man junge Reispflanzen mit der Wirkstoffzubereitung bis zur Tropfnässe. 1 Tag nach dem Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer wäßrigen Sporensuspension von Pyricularia oryzae inokuliert. Anschließend werden die Pflanzen in einem Gewächshaus bei 100% rel. Luftfeuchtigkeit und 25°C aufgestellt.

4 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung.

Dabei bedeutet 0% ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht. während ein Wirkungsgrad von 100% bedeutet, daß kein Befall beobachtet wird.

Bei diesem Test zeigt z.B. die folgenden Verbindungen der Herstellungsbeispiele (1), (2), (3), (4), (8), (9), (10), (20), (21), (22) und (24) bei einer beispielhaften Aufwandmenge an Wirkstoff von 759'0 g/ha einen Wirkungsgrad von 80 % im Vergleich zur unbehandelten Kontrolle.

Beispiel G

Puccinia-Test (Weizen) / protektiv

5

10

15

20

25

Lösungsmittel:

25 Gewichtsteile N,N-Dimethylacetamid

Emulgator:

0,6 Gewichtsteile Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer Konidiensuspension von Puccinia recondita besprüht. Die Pflanzen verbleiben 48 Stunden bei 20°C und 100 % relativer Luftfeuchtigkeit in einer Inkubationskabine.

Die Pflanzen werden dann in einem Gewächshaus bei einer Temperatur von ca. 20°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von 80 % aufgestellt, um die Entwicklung von Rostpusteln zu begünstigen.

10 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, daß kein Befall beobachtet wird.

Bei diesem Test zeigen die in den Beispielen (1), (2), (5), (12), (13), (14), (15), (16), (24) und (26) aufgeführten erfindungsgemäßen Stoffe bei einer Aufwandmenge von 250 g/ha einen Wirkungsgrad von 90 % oder mehr.

Beispiel H

Fusarium nivale (var. nivale)-Test (Weizen) / protektiv

5 Lösungsmittel:

10

15

20

25 Gewichtsteile N,N-Dimethylacetamid

Emulgator:

0,6 Gewichtsteile Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer Konidiensuspension von Fusarium nivale (var. nivale) besprüht.

Die Pflanzen werden in einem Gewächshaus unter lichtdurchlässigen Inkubationshauben bei einer Temperatur von ca. 15°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 100 % aufgestellt.

4 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, daß kein Befall beobachtet wird.

Bei diesem Test zeigen die in den Beispielen (1), (2), (13), (14), (15), (16), (17), (20), (21), (22), (24) und (26) aufgeführten erfindungsgemäßen Stoffe bei einer Aufwandmenge von 250 g/ha einen Wirkungsgrad von 90 % oder mehr

Beispiel I

Pyrenophora teres-Test (Gerste) / protektiv

5 Lösungsmittel:

10

15

20

25 Gewichtsteile N,N-Dimethylacetamid

Emulgator:

0,6 Gewichtsteile Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegeben Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer Konidiensuspension von Pyrenophora teres besprüht. Die Pflanzen verbleiben 48 Stunden bei 20°C und 100 % relativer Luftfeuchtigkeit in einer Inkubationskabine.

Die Pflanzen werden dann in einem Gewächshaus bei einer Temperatur von ca. 20°C und relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 80 % aufgestellt.

7 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, daß kein Befall beobachtet wird.

Bei diesem Test zeigen die in den Beispielen (17) und (28) aufgeführten erfindungsgemäßen Stoffe bei einer Aufwandmenge von g/ha einen Wirkungsgrad von 90 % oder mehr.

Beispiel K

Phytophthora-Test (Tomate) / protektiv

5 Lösungsmittel:

10

15

20

47 Gewichtsteile Aceton

Emulgator:

3 Gewichtsteile Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer wäßrigen Sporensuspension von Phytophthora infestans inokuliert. Die Pflanzen werden dann in einer Inkubationskabine bei ca. 20°C und 100 % relativer Luftfeuchtigkeit aufgestellt.

3 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, daß kein Befall beobachtet wird.

Bei diesem Test zeigen die in den Beispielen (8 (9) und (10) aufgeführten erfindungsgemäßen Stoffe bei einer Aufwandmenge von g/ha einen Wirkungsgrad von 96 % oder mehr.

Patentansprüche

1. Verbindungen der allgemeinen Formel (I),

in welcher

5

10

15

20

Z für jeweils gegebenenfalls substituiertes Cycloalkyl, Aryl oder Heterocyclyl steht,

R für Wasserstoff oder Alkyl steht,

Q für Sauerstoff oder Schwefel steht und

X für Halogen steht,

L¹, L², L³ und L⁴ gleich oder verschieden sind und unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, Halogen, Cyano, Nitro, jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl stehen.

- 2. Verbindungen der Formel (I), gemäß Anspruch 1 in welcher
 - Z für jeweils gegebenenfalls einfach bis zweifach durch Halogen, Alkyl, oder Hydroxy substituiertes Cycloalkyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen; für gegebenenfalls durch Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Heterocyclyl mit 3 bis 7 Ringgliedern; oder für jeweils gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl oder Naphthyl steht, wobei die möglichen Substituenten vorzugsweise aus der nachstehenden Aufzählung ausgewählt sind:

Halogen, Cyano, Nitro, Amino, Hydroxy, Formyl, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl;

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Hydroxyalkyl, Oxoalkyl, Alkoxy, Alkoxyalkyl, Alkylthioalkyl, Dialkoxyalkyl, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 8 Kohlenstoffatomen;

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl oder Alkenyloxy mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen;

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl oder Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen;

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkenyl oder Halogenalkenyloxy mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 11 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen;

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkylamino, Dialkylamino,

Alkylcarbonyl, Alkylcarbonyloxy, Alkoxycarbonyl, Alkylaminocarbonyl, Dialkylaminocarbonyl, Dialkylaminocarbonyl, Dialkylaminocarbonyloxy, Alkenylcarbonyl oder Alkinylcarbonyl, mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den jeweiligen Kohlenwasserstoffketten;

Cycloalkyl oder Cycloalkyloxy mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen;

jeweils gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Oxo, Methyl, Trifluormethyl oder Ethyl substituiertes, jeweils zweifach verknüpftes Alkylen mit 3 oder 4 Kohlenstoffatomen, Oxyalkylen mit 2 oder 3 Kohlenstoffatomen oder Dioxyalkylen mit 1 oder 2 Kohlenstoffatomen;

oder eine Gruppierung
$$A^1 \downarrow I \downarrow I \downarrow I$$
, worin

10

5

15

20

25

10

15

20

30

- Al für Wasserstoff, Hydroxy oder Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder Cycloalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen steht und
- A² für Hydroxy, Amino, Methylamino, Phenyl, Benzyl oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Hydroxy, Alkoxy, Alkylthio, Alkylamino, Dialkylamino oder Phenyl substituiertes Alkyl oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, oder für Alkenyloxy oder Alkinyloxy mit jeweils 2 bis 4 Kohlenstoffatomen steht,

sowie jeweils gegebenenfalls im Ringteil einfach bis dreifach durch Halogen, und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Phenyl, Phenoxy, Phenyllthio, Benzoyl, Benzoylethenyl, Cinnamoyl, Heterocyclyl oder Phenylalkyl, Phenylalkyloxy, Phenylalkylthio, oder Heterocyclylalkyl, mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen in den jeweiligen Alkylteilen,

- R für Wasserstoff oder Methyl steht,
- Q für Sauerstoff oder Schwefel steht und
- X für Fluor, Chlor, Brom oder Iod steht,
- L¹, L², L³ und L⁴ gleich oder verschieden sind und unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, Halogen, Cyano, Nitro, jeweils gegebenenfalls durch 1 bis 5 Halogenatome substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen stehen.
- 25 3. Verbindungen der Formel (I) gemäß Anspruch 1, in welcher
 - Z für jeweils gegebenenfalls einfach bis zweifach durch Fluor, Chlor, Methyl, Ethyl oder Hydroxy substituiertes Cyclopentyl oder Cyclohexyl; für gegebenenfalls durch Methyl oder Ethyl substituiertes Thienyl, Pyridyl oder Furyl;

oder für jeweils gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl oder Naphthyl steht, wobei die möglichen Substituenten vorzugsweise aus der nachstehenden Aufzählung ausgewählt sind:

Fluor, Chlor, Brom, Iod, Cyano, Nitro, Amino, Hydroxy, Formyl, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl

Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, 1-, 2-, 3-, neo-Pentyl, 1-, 2-, 3-, 4-(2-Methylbutyl), 1-, 2-, 3-Hexyl, 1-, 2-, 3-, 4-, 5-(2-Methylpentyl), 1-, 2-, 3-(3-Methylpentyl), 2-Ethylbutyl, 1-, 3-, 4-(2,2-Dimetylbutyl), 1-, 2-(2,3-Dimethylbutyl), Hydroxymethyl, Hydroxymethyl, Methoxymethyl, Dimethoxymethyl,

Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy,

Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl oder Ethylsulfonyl,

Vinyl, Allyl, 2-Methylallyl, Propen-1-yl, Crotonyl, Propargyl, Vinyloxy, Allyloxy, 2-Methylallyloxy, Propen-1-yloxy, Crotonyloxy, Propargyloxy;

Trifluormethyl, Trifluorethyl,

Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Difluorchlormethoxy, Trifluorethoxy, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Difluorchlormethylthio, Trifluormethylsulfinyl oder Trifluormethylsulfonyl,

Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, Dimethylamino, Diethylamino,

Acetyl, Propionyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, Methylamino-carbonyl, Ethylaminocarbonyl, Dimethylaminocarbonyl, Diethylaminocarbonyloxy, Diethylaminocarbonyloxy, Benzylaminocarbonyl, Acryloyl, Propioloyl,

Cyclopentyl, Cyclohexyl,

jeweils gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Oxo, Methyl oder Trifluormethyl substituiertes,

10

5

15

20

25

30

10

15

20

jeweils zweifach verknüpftes Propandiyl, Ethylenoxy, Methylendioxy, Ethylendioxy

oder eine Gruppierung
$$A^1$$
, wobe

- A¹ für Wasserstoff, Methyl oder Hydroxy steht und
- A² für Hydroxy, Methoxy, Ethoxy, Amino, Methylamino, Phenyl, Benzyl oder Hydroxyethyl steht, sowie

jeweils gegebenenfalls im Ringteil einfach bis dreifach durch Halogen, und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Phenyl, Phenoxy, Phenyllthio, Benzoyl, Benzoylethenyl, Cinnamoyl, Benzyl, Phenylethyl, Phenylpropyl, Benzyloxy, Benzylthio, 5,6-Dihydro-1,4,2-dioxazin-3-ylmethyl, Triazolylmethyl, Benzoxazol-2-ylmethyl, 1,3-Dioxan-2-yl, Benzimidazol-2-yl, Dioxol-2-yl, Oxadiazolyl,

- R für Wasserstoff oder Methyl steht,
- Q für Sauerstoff oder Schwefel steht und
- X für Fluor oder Chlor steht und
- L¹, L², L³ und L⁴ gleich oder verschieden sind und unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl oder Ethylsulfonyl, Trifluormethyl, Trifluormethyl, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Trifluormethylsulfinyl oder Trifluormethylsulfonyl stehen.
- 25 4. Verbindungen der Formel (I) gemäß Anspruch 1 in denen Q für Sauerstoff steht.

10

15

- 5. Schädlingsbekämpfungsmittel, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einer Verbindung der Formel (I) nach Anspruch 1.
- 6. Verfahren zur Bekämpfung von Schädlingen, dadurch gekennzeichnet, daß man Verbindungen der Formel (I) nach Anspruch 1 auf Schädlinge und/oder ihren Lebensraum einwirken läßt.
- 7. Verwendung von Verbindungen der Formel (I) nach den Ansprüchen 1 bis 4 zur Bekämpfung von Schädlingen.
- 8. Verfahren zur Herstellung von Schädlingsbekämpfungsmitteln, dadurch gekennzeichnet, daß man Verbindungen der Formel (I) nach den Ansprüchen 1 bis 4 mit Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Mitteln vermischt.
- 9. Verbindungen der Formel (IV)

in welcher

- L¹, L², L³ und L⁴ gleich oder verschieden sind und unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, Halogen, Cyano, Nitro, jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl stehen,
- R für Wasserstoff oder Alkyl steht,
- X für Halogen steht und
- 20 Y² für Halogen steht.

10. Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I)

in welcher

5

15

- Z für jeweils gegebenenfalls substituiertes Cycloalkyl, Aryl oder
 Heterocyclyl steht,
 - R für Wasserstoff oder Alkyl steht,
 - Q für Sauerstoff oder Schwefel steht und
 - X für Halogen steht,
- 10 L¹, L², L³ und L⁴ gleich oder verschieden sind und unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, Halogen, Cyano, Nitro, jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl stehen.

dadurch gekennzeichnet, daß man

a) 2-(2-Hydroxy-phenyl)-2-methoxyimino-acetamide der Formel (II),

in welcher

R, L^1 , L^2 , L^3 und L^4 die oben angegebenen Bedeutungen haben,

10

15

mit einem substituierten Halogenpyrimidin der allgemeinen Formel (III),

$$R Q X Y^1$$
(III)

in welcher

Z, Q, R und X die oben angegebenen Bedeutungen haben und

Y¹ für Halogen steht,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators, umsetzt, oder daß man

b) Phenoxypyrimidine der allgemeinen Formel (IV)

$$V^2$$
 X
 H_3C
 O
 M
 R
 R
 (IV)

in welcher

 Y^2

R, L¹, L², L³, L⁴ und X die oben angegebenen Bedeutungen haben und

mit einer Ringverbindung der allgemeinen Formel (V),

für Halogen steht,

$$Z-Q-H$$
 (V)

in welcher

Z und Q die oben angegebenen Bedeutungen haben,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators, umsetzt.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Intern nal Application No PCT/EP 97/05954

A. CLASSII IPC 6	FICATION OF SUBJECT MATTER C07D239/52 C07D239/56 A01N43	/54		
According to	o International Patent Classification (IPC) or to both national classif	ication and IPC		
B. FIELDS	SEARCHED			
Minimum do IPC 6	coumentation searched (classification system followed by classified CO7D A01N	ation symbols)		
Documentat	tion searched other than minimum documentation to the extent that	such documents are included in the fields se	arched	
Electronic d	lata base consulted during the international search (name of data t	case and, where practical, search terms used		
C. DOCUM	ENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT			
Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the r	elevant passages	Relevant to claim No.	
Υ	DE 44 43 641 A (BAYER AG) 13 June 1996 see claims 1-11; example 22		1-10	
Y	GB 2 253 624 A (IMPERIAL CHEMICAL INDUSTRIES PLC) 16 September 1992 cited in the application see claims 1-4		1-10	
Y	EP 0 647 631 A (BASF AG) 12 April 1995 see claims 1-10		1-10	
Υ	EP 0 398 692 A (SHIONOGI & CO. November 1990 see claims 1-16; examples 79,85		1-10	
Fur	ther documents are listed in the continuation of box C.	Patent family members are listed	in annex.	
"A" document defining the general state of the art which is not cited to understand to considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral discipsure, use, exhibition or communication or communi			shed after the international filing date not in conflict with the application but the principle or theory underlying the ar relevance; the claimed invention ed novel or cannot be considered to a step when the document is taken alone ar relevance; the claimed invention ed to involve an inventive step when the ned with one or more other such docunation being obvious to a person skilled of the same patent family	
Date of the	e actual completion of the international search	Date of mailing of the international se	arch report	
9	9 April 1998	3 O. 04. 98		
Name and	mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Authorized afficer Herz, C		

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

Intern nal Application No
PCT/EP 97/05954

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
DE 4443641 A	13-06-96	AU 4257096 A WO 9617825 A EP 0796242 A	26-06-96 13-06-96 24-09-97
GB 2253624 A	16-09-92	NONE	
EP 647631 A	12-04-95	CA 2117837 A CN 1107141 A JP 7188113 A US 5602181 A	13-04-95 23-08-95 25-07-95 11-02-97
EP 398692 A	22-11-90	AT 141589 T AT 145891 T AU 628972 B AU 5508890 A CA 2017076 A DE 69028136 D DE 69029334 D DE 69029334 T EP 0629609 A ES 2093013 T ES 2097583 T JP 8253449 A JP 8231310 A JP 2558001 B JP 3246268 A KR 9502600 B US 5371223 A US 5401877 A US 5548078 A US 5185342 A US 5371222 A	15-09-96 15-12-96 24-09-92 22-11-90 17-11-90 26-09-96 23-01-97 16-01-97 30-04-97 21-12-94 16-12-96 01-04-97 01-10-96 10-09-96 27-11-96 01-11-91 23-03-95 06-12-94 28-03-95 20-08-96 09-02-93 06-12-94

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Intern nales Aktenzeichen PCT/EP 97/05954

A. KLASSI IPK 6	FIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES CO7D239/52 CO7D239/56 A01N43/5	4		
Nach der In	ternationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klass	sifikation und der IPK		
B. RECHEI	RCHIERTE GEBIETE			
Recherchies IPK 6	rter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbol CO7D A01N	e)		
Recherohie	rte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, sov	veit diese unter die recherchierten Gebiete (allen .	
Während de	er internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Ne	ame der Datenbank und evtl. verwendete S	uchbegriffe)	
C. ALS WE	SENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN			
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe	der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.	
Υ	DE 44 43 641 A (BAYER AG) 13.Juni siehe Ansprüche 1-11; Beispiel 22		1-10	
Y	GB 2 253 624 A (IMPERIAL CHEMICAL INDUSTRIES PLC) 16.September 1992 in der Anmeldung erwähnt siehe Ansprüche 1-4		1-10	
Υ	EP 0 647 631 A (BASF AG) 12.April 1995 siehe Ansprüche 1-10		1-10	
Y	EP 0 398 692 A (SHIONOGI & CO. LTD.) 22.November 1990 siehe Ansprüche 1-16; Beispiele 79,85,107		1-10	
	itere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu nehmen	X Siehe Anhang Patentfamilie	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	
**T* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Effindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist "X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Effindung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Veröffentlichung von besond				
9	9.April 1998	3 0. 04. 98		
Name und	Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo ni, Fey: (+31-70) 340-3016	Bevollmächtigter Bediensteter Herz, C		

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Interm (ales Aktenzeichen
PCT/EP 97/05954

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
DE 4443641 A	13-06-96	AU 4257096 A WO 9617825 A EP 0796242 A	26-06-96 13-06-96 24-09-97
GB 2253624 A	16-09-92	KEINE	
EP 647631 A	12-04-95	CA 2117837 A CN 1107141 A JP 7188113 A US 5602181 A	13-04-95 23-08-95 25-07-95 11-02-97
EP 398692 A	22-11-90	AT 141589 T AT 145891 T AU 628972 B AU 5508890 A CA 2017076 A DE 69028136 D DE 69028136 T DE 69029334 D DE 69029334 T EP 0629609 A ES 2093013 T ES 2097583 T JP 8253449 A JP 8231310 A JP 2558001 B JP 3246268 A KR 9502600 B US 5371223 A US 5401877 A US 5548078 A US 5185342 A US 5371222 A	15-09-96 15-12-96 24-09-92 22-11-90 17-11-90 26-09-96 23-01-97 16-01-97 30-04-97 21-12-94 16-12-96 01-04-97 01-10-96 10-09-96 27-11-96 01-11-91 23-03-95 06-12-94 28-03-95 20-08-96 09-02-93 06-12-94